<報文>移動層による酸化鉄ペレットの還元反応操作における流動，伝熱，物質移動の同時解析

著者	八木　順一郎，大森　康男
雑誌名	東北大學選鑛製錬研究所彙報 = Bulletin of the Research Institute of Mineral Dressing and Metallurgy, Tohoku University
巻	35
号	2
ページ	115-126
発行年	1980-03-06
URL	http://hdl.handle.net/10097/32778

移動層による酸化鉄ペレットの還元反応操作における流動，伝熱，物質移動の同時解析

八　木　順一郎*　　大　森　康　男*

Simultaneous Analysis on Gas Flow, Heat Transfer and Mass Transfer in the Reduction of Iron Oxide Pellets in Moving Beds. By Jun-ichiro YAGI and Yasuo OMORI

A two-dimensional mathematical model was developed to obtain the distributions of the process variables in moving bed reactors for the reduction of iron oxide pellets and to evaluate reactor performance. The model involves not only heat and material balance equations for a noncatalytic reaction system, but also multi-dimensional Ergun's equation as the equation of motion.

Numerical computation was conducted for two modes of gas introduction assuming the simplified structure of the bed. In the first case, reducing gas was introduced through the side slit for hydrogen reduction. In the other case, it was done from the bottom of the bed for hydrogen and carbon monoxide reduction.

It was found from the computed results that the structure of the bed strongly affected the gas flow, and the nonuniform distributions of temperature and concentration of the gas were primarily caused by the nonuniform gas flow and chemical reaction. The operational results which included the effects of the bed structure and the nonuniform gas flow were obtained from the model. This means that the model is useful for estimating the performance of large-scale industrial shaft furnaces.

(Received November 9, 1979)

1. 緒　　言

開発途上国の中には，高炉，転炉法で大量の鉄を生産するほど鉄鋼の需要はないが，高品位の鉄鉱石やエネルギー源として天然ガス，還元用石炭などを豊富に有する国々があり，これらの国々ならびに米国など先進国も含めて，直接製鉄プロセスによる還元鉄の製造が急速に増加してきている．この直接製鉄法にはシャフト炉法，固定層法，ロータリーキルン法，流動層法などが開発されているが，現在，固定層法とシャフト炉（移動層）法が主流になりつつある．しかしながら，これらプロセスの理論的な解明はほとんど行われておらず，今後の課題として残されている．

移動層のように気固非触媒反応を伴う反応操作を解明する場合，反応速度式および速度パラメータの決定に関する研究と反応器のプロセス解析に関する研究が必要である．前者についてはSpitzerら[1]により提唱され，原ら[2]により改良された三界面未反応核モデルがプロセス解析に応用できるという点を考慮すると，現段階では，もっともすぐれた反応速度式であると考えられ，本報においても，酸化鉄の H_2 あるいは CO 還元の反応速度式として採用した．他方，反応器の操作解析については，従来，非触媒反応を伴う熱と物質の移動が1次元問題として取り扱われていた[3)~9)]．また，

選鉱製錬研究所報告　第796号　昭和53年10月　日本鉄鋼協会富山大会にて講演
*　東北大学選鉱製錬研究所

1) R.H. Spitzer, F.S. Manning and W.O. Philbrook: Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 1715.
2) 原　行明，土屋　勝，近藤真一：鉄と鋼，**60**(1974)，1261.
3) 森山　昭：選研彙，**26**(1970)，133.
4) 八木順一郎，森山　昭，鞭　巌：金属学会誌，**32**(1968)，209.
5) R.H. Spitzer, F.S. Manning and W.O. Philbrook: Trans. Met. Soc. AIME, **242** (1968), 618.
6) 村山武昭，小野陽一，川合保治：鉄と鋼，**64**(1978)，1518.
7) 天辰正義，相馬胤和：鉄と鋼，**62**(1976)，S 383.
8) M. Ishida and C.Y. Wen: Ind. Eng. Chem. Process Des Develop., **10** (1971), 164.
9) 沢村企好，石松節生，村山武昭：鉄と鋼，**59**(1973)，1879.

原ら[10]，柳谷ら[11]は実験室的規模の移動層を建設し，プロセスシミュレーションを行っている．

しかしながら，工業的なプロセスの場合，半径方向の不均一性を考慮するため，充填層内のガスの不均一流れを検討する必要がある．Radestock ら[12]，Stanek ら[13]は Ergun 式を多次元に拡張し，充填層内のガス流れを解析する方法を提案し，この方法に基づく多くの研究[16)~17)]が報告されている．Radestock ら，Stanek らの研究は，ガス流れと伝熱の研究にとどまっているのに対し，著者らはすでに移動層による酸化鉄ペレットの還元反応操作を解析するため，流動，伝熱，物質移動を考慮したプロセスモデルを開発した．しかし，前報[16),17)]においてはこれらを同時に考慮した完全な数値解が得られていなかった．ここでは，このモデルに若干の改良を加え，移動層による酸化鉄の水素還元および CO 還元反応操作について，単純なガス組成および充填構造を与えた場合のプロセス変数の2次元的な分布ならびに還元プロセスの総合的な解析を行った．本研究で示す方法はシャフト炉プロセスの2次元的な解析とその性能評価を行う基礎を与えるものである．

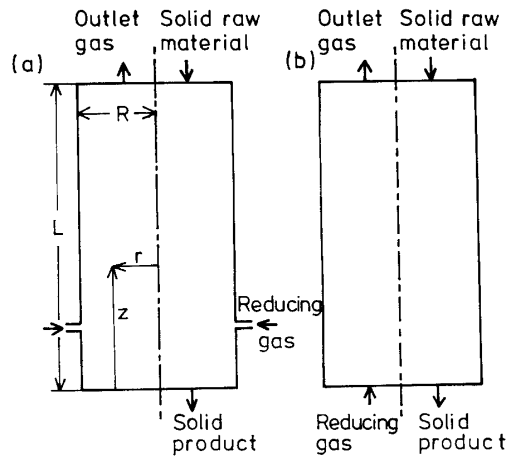

Fig. 1 Schematic representation of moving bed reactors.

2. 基 礎 式

Fig. 1 に示すような2次元の移動層を考え，H_2 あるいは CO ガスで酸化鉄ペレットの還元を行う．Fig. 1 (a) はサイドスリットを通して還元ガスが導入される場合であり，Fig. 1 (b) は層底から導入される場合である．(a) の形式はより実際のシャフト炉に近づけたものであるが，(b) の形式は現実に操作するには困難である．しかし，数値解析においては (b) の方が収束性がよく計算しやすい．どちらの場合についても基礎式は同じであり，境界条件が異なるのみである．還元ガスを H_2-N_2 系，あるいは，CO-N_2 系であると考えると，温度が 848K 以上の領域では酸化鉄ペレットは次式に従って還元される．

$$3Fe_2O_3 + H_2(\mathrm{or}\ CO) = 2Fe_3O_4 + H_2O(\mathrm{or}\ CO_2) \tag{1}$$

$$Fe_3O_4 + H_2(\mathrm{or}\ CO) = 3FeO + H_2O(\mathrm{or}\ CO_2) \tag{2}$$

$$FeO + H_2(\mathrm{or}\ CO) = Fe + H_2O(\mathrm{or}\ CO_2) \tag{3}$$

温度が 848K 以下の領域では FeO が不安定になるので (1) 式とつぎの (4) 式に従って還元が進行する．

$$(1/4)Fe_3O_4 + H_2(\mathrm{or}\ CO) = (3/4)Fe + H_2O(\mathrm{or}\ CO_2) \tag{4}$$

基礎式の導出に際し，つぎの仮定をもうけた．

(1) 定常状態である．

(2) 円柱軸対称である．

10) 原 行明，坂輪光弘，近藤真一： 鉄と鋼，**62**(1976)，315.
11) T. Yanagiya, J. Yagi and Y. Omori: Ironmaking and Steelmaking, **6** (1979), 93.
12) J. Radestock and R. Jeshar: Chem. Ing. Tech., **43** (1971), 355; 1304; Stahl und Eisen **22** (1970), 1249.
13) V. Stanek and J. Szekely: Can. J. Chem. Eng., **50** (1972), 9; **51** (1973), 22.
14) M. Kuwabara and I. Muchi: Trans. ISIJ, **17** (1977), 330.
15) 羽田野道春，栗田興一： 鉄と鋼，**62**(1976)，953.
16) J. Yagi and J. Szekely: Trans. ISIJ, **17** (1977), 569.
17) J. Yagi and J. Szekely: Trans. ISIJ, **17** (1977), 576.

(3)　反応熱は粒子に与える．

(4)　粒子内は等温である．

(5)　酸化鉄の還元速度は三界面未反応核モデルに従う．

(6)　ガスの運動の方程式は Ergun 式で与えられる．

これらの仮定のもとに，層内の微少要素について行った物質収支，熱収支から得られた式，ならびに，ガスの連続の式と拡張 Ergun 式とから，つぎのような数学的モデルが導出される．

還元ガスの物質収支；

$$
\begin{aligned}
&-\alpha_2\left(\frac{P_e}{P_0}\right)\left(\frac{P}{T_a}\right)\frac{\partial^2 X}{\partial z^2}-\alpha_1\left(\frac{P_e}{P_0}\right)\left(\frac{P}{T_a}\right)\frac{\partial^2 X}{\partial r^2}\\
&+\left\{F_4 G_z-\alpha_2\left(\frac{P_e}{P_0}\right)\left(\frac{P}{T_a}\right)\left(\frac{2}{P}\frac{\partial P}{\partial z}-\frac{2}{T_a}\frac{\partial T_a}{\partial z}\right)\right\}\frac{\partial X}{\partial z}\\
&+\left\{F_4 G_r-\alpha_1\left(\frac{P_e}{P_0}\right)\left(\frac{P}{T_a}\right)\left(\frac{1}{r}+\frac{2}{P}\frac{\partial P}{\partial r}-\frac{2}{T_a}\frac{\partial T_a}{\partial r}\right)\right\}\frac{\partial X}{\partial r}\\
&+\left(F_1+X\frac{M_r}{M}F_2\right)R^*-\alpha_1\left(\frac{P_e}{P_0}\right)\left(\frac{PX}{T_a}\right)\left\{-\frac{1}{rT_a}\cdot\frac{\partial T_a}{\partial r}\right.\\
&\left.-\frac{1}{T_a}\frac{\partial^2 T_a}{\partial r^2}-\frac{2}{PT_a}\left(\frac{\partial T_a}{\partial r}\right)\left(\frac{\partial P}{\partial r}\right)+\frac{2}{T_a{}^2}\left(\frac{\partial T_a}{\partial r}\right)^2+\frac{1}{rP}\frac{\partial P}{\partial r}+\frac{1}{P}\frac{\partial^2 P}{\partial r^2}\right\}\\
&-\alpha_2\left(\frac{P_e}{P_0}\right)\left(\frac{PX}{T_a}\right)\left\{-\frac{1}{T_a}\frac{\partial^2 T_a}{\partial z^2}-\frac{2}{T_aP}\left(\frac{\partial P}{\partial z}\right)\left(\frac{\partial T_a}{\partial z}\right)\right.\\
&\left.+\frac{2}{T_a{}^2}\left(\frac{\partial T_a}{\partial z}\right)^2+\frac{1}{P}\left(\frac{\partial^2 P}{\partial z^2}\right)\right\}=0
\end{aligned}
\tag{5}
$$

粒子の物質収支；

$$
\frac{\partial G_{Sz}}{\partial z}-\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(rG_{Sr})-F_3R^*=0 \tag{6}
$$

ガスの熱収支；

$$
\begin{aligned}
&-\beta k_g\frac{\partial^2 T}{\partial z^2}-\beta k_g\frac{\partial^2 T}{\partial r^2}+\left\{G_z\left(C_g\frac{\partial T}{\partial z}+T\frac{\partial C_g}{\partial z}\right)-\beta\frac{\partial k_g}{\partial z}\cdot\frac{\partial T}{\partial z}\right\}+G_rT\frac{\partial C_g}{\partial r}\\
&+\left\{G_rC_g-\beta\left(\frac{\partial k_g}{\partial r}+\frac{k_g}{r}\right)\right\}\frac{\partial T}{\partial r}+\gamma(T-t)+F_2C_gTR^*=0
\end{aligned}
\tag{7}
$$

粒子の熱収支；

$$
\begin{aligned}
&\beta_S k_S\frac{\partial^2 t}{\partial z^2}+\beta_S k_S\frac{\partial^2 t}{\partial r^2}+G_{Sz}\left(C_S\frac{\partial t}{\partial z}+t\frac{\partial C_S}{\partial z}\right)+\beta_S\frac{\partial k_S}{\partial z}\cdot\frac{\partial t}{\partial z}-G_{Sr}t\frac{\partial C_S}{\partial r}\\
&\quad+\left\{-G_{Sr}C_S+\beta_S\left(\frac{\partial k_S}{\partial r}+\frac{k_S}{r}\right)\right\}\frac{\partial t}{\partial r}+C_StF_3R^*+(-\triangle H)\zeta R^*+r_S(T-t)=0
\end{aligned}
\tag{8}
$$

多次元化した Ergun 式；

$$
-\mathrm{grad}\,P=(f_a+f_b|\vec{\boldsymbol{G}}|)\vec{\boldsymbol{G}} \tag{9}
$$

連続の式；

$$
\partial(rG_z)/\partial z+\partial/\partial r\{rG_r-F_2\int_0^r R^*r\,dr\}=0 \tag{10}
$$

この連続の式を満足するように，修正した流れの関数を (11) 式で定義する．

$$\frac{\partial\psi}{\partial r}=rG_z,\qquad -\frac{\partial\psi}{\partial z}=rG_r-F_2\int_0^r R^* r\,dr \tag{11}$$

この定義によると，連続の式は満足されているので，反応に伴うガスの質量速度の変化を表現することができる．しかしながら，わき出しや吸い込みがない場合，流れの関数の等高線は流線を表わすが (11) 式で定義された ψ については，反応に伴うわき出しがあるため，流れの関数の等高線は正確には流線にならない．

(9) 式から P を消去し，(11) 式を使って G_r, G_z を ψ におきかえると，(12) 式で表わされる運動の方程式が得られる．

運動の方程式

$$\begin{aligned}&\left\{f_a+\frac{f_b}{r}J_g+\frac{f_b}{r}\left(\frac{\partial\psi}{\partial r}\right)^2 J_g^{-1}\right\}\frac{\partial^2\psi}{\partial r^2}\\&-\left\{f_a+\frac{f_b}{r}J_g+\frac{f_b}{r}\left(I-\frac{\partial\psi}{\partial z}\right)J_g^{-1}\right\}\frac{\partial}{\partial z}\left(I-\frac{\partial\psi}{\partial z}\right)\\&+\left\{-\frac{f_a}{r}+\frac{\partial f_b}{\partial r}+\frac{1}{r}\left(\frac{\partial f_b}{\partial r}-\frac{2f_b}{r}\right)J_g\right\}\frac{\partial\psi}{\partial r}-\left(\frac{\partial f_a}{\partial z}+\frac{1}{r}\frac{\partial f_b}{\partial z}J_g\right)\left(I-\frac{\partial\psi}{\partial z}\right)\\&-\frac{f_b}{r}\left(I-\frac{\partial\psi}{\partial z}\right)J_g^{-1}\frac{\partial\psi}{\partial r}\left\{-\frac{\partial}{\partial r}\left(I-\frac{\partial\psi}{\partial z}\right)+\frac{\partial^2\psi}{\partial z\cdot\partial r}\right\}=0\end{aligned} \tag{12}$$

ここで，　$J_g=\sqrt{(\partial\psi/\partial r)^2+(I-\partial\psi/\partial r)^2}$，　$I=\int_0^r r\ F_2R^*dr$

圧力分布については (11), (12) 式から得られる G_r, G_z の分布を (9) 式に代入することによっても得られるが，ここでは計算誤差を小さくし，平均的な圧力分布を求めるため (9) 式の発散をとり，得られる (13) 式から圧力分布を計算した．

$$-\operatorname{div}\operatorname{grad}P=\operatorname{grad}(f_a+f_b|\vec{G}|)\cdot\vec{G}+(f_a+f_b|\vec{G}|)\operatorname{div}\boldsymbol{G} \tag{13}$$

前報[16),17)]では多次元化した Ergun 式として，それぞれの方向に独立に Ergun 式を適用した形を採用したが，ここでは(9)式で示したベクトル形を使用した．両者の相違についてはすでに報告[18)]したが，ほとんど差異は認められず，2次元の移動層内におけるガス流れについてはいずれの式を使用してもほとんど同じ数値解が得られる．

粒子の反応率分布は (14) 式から求めた．

$$df_i/dz=-(L/u_s)(3V_i/4\pi r_0^3 D_{0i})\ (i=1\sim4) \tag{14}$$

i は (1)～(4) 式で表わされる反応を意味する．従って総括的な反応率は (15) 式で表わされる．

$$f=\begin{cases}f_1/9+2f_2/9+2f_3/3 & t>848\,K\\ f_1/9+8f_4/9 & t<848\,K\end{cases} \tag{15}$$

(14) 式中，V_i は各反応段階における反応速度であり，原ら[2)]の示した3界面未反応核モデルによって定められる．

3. 反応速度定数および粒子内拡散係数

反応速度定数については，水素還元の場合，原ら[10)]が示した式を，また，CO 還元の場合，村山ら[19)]の測定値を使用した．これらをまとめて Table 1 に示した．村山らは (4) 式の反応については

18) 八木順一郎： 日本金属学会々報，**16**(1977)，357.
19) 村山武昭，小野陽一，川合保治： 鉄と鋼，**63**(1977)，1099.

測定していないので，CO 還元については $k_4=k_1$ と仮定したが，移動層においては低温域で (4) 式の反応が極端に進行することはないので実際上はほとんど問題にならない．

粒子内拡散係数については，原らは酸化鉄ペレットの H_2 還元反応における拡散率の値を還元条件によってそれほど変化しないとし，定数で与えている．他方，CO 還元の場合，村山らは粒子内拡散係数と気孔率および温度の関係を示しているので，そのままの形で使用することにした．これらの数値をまとめて Table 2 に示した．

Table 1　Reaction Rate Constants for the Reactions Given by Equations (1)～(4), (m/s).

	H_2 Reduction	CO Reduction
k_1	$\exp\{3.731-8000/(t'+273)\}$	$\exp\{3.163-9520/(t'+273)\}$
k_2	$\exp\{3.100-9000/(t'+273)\}$	$\exp\{7.575-14490/(t'+273)\}$
k_3	$\exp\{8.313-14000/(t'+273)\}$	$\exp\{8.095-15050/(t'+273)\}$
k_4	$\exp\{4.710-8000/(t'+273)\}$	$=k_1$

Table 2　Diffusibility for the Reactions Given by Equations (1)～(4), (－).

	H_2 Reduction	CO Reduction	
D_{e1}/D	0.13	$(0.008+0.992\varepsilon_{po})\exp\{0.008797(t'+273)-12.3256\}$	
D_{e2}/D	0.20	$(0.122+0.878\varepsilon_{po})\exp\{0.00366(t'+273)-5.6815\}$	
D_{e3}/D	0.35	$(0.435+0.565\varepsilon_{po})\exp\{0.02349(t'+273)-28.2118\}$	$t'<900°C$
		$(0.435+0.565\varepsilon_{po})\exp\{0.002856(t'+273)-3.9934\}$	$t'\geq 900°C$
D_{e4}/D	0.20	$=D_{e2}/D_{CO}$	

4.　平衡定数と反応熱

使用した平衡定数を Table 3 に示した．H_2 還元については Emmett ら[20] の測定値を原ら[2] が数式で表したものである．CO 還元については Bogdandy ら[21] のデータに基づき村山ら[19] が数式化したものである．ただし，(4) 式の反応の平衡定数については Bogdandy らのデータから著者が作成した数式を Table 3 に示した．反応熱については Bogdandy らのデータに基づき，Table 4 に示した数式を求めた．

Table 3　Equilibrium Constants for the Reactions Given by Equations (1)～(4), (－).

	H_2 Reduction	CO Reduction
K_1	$\exp\{10.32+362/(t'+273)\}$	$\exp\{7.255+3720/(t'+273)\}$
K_2	$\exp\{8.98-8580/(t'+273)\}$	$\exp\{5.289-4711/(t'+273)\}$
K_3	$\exp\{1.30-2070/(t'+273)\}$	$\exp\{-3.127+2879/(t'+273)\}$
K_4	$\exp\{3.719-4101/(t'+273)\}$	$\exp\{-1.032+981.5/(t'+273)\}$

5.　輸　送　定　数

基礎式中に現われるガス，粒子の有効熱伝導度，混合拡散係数，混合ガスの粘性係数，拡散係数などの推算は前報[16] と同じ方法を使用しているので，ここではこれらに関する記述を省略する．

20) P.H. Emmett and J.F. Schultz: J. Amer. Chem. Soc., **55** (1933), 1376.
21) L. von Bogdandy and H.H. Engell: The Reduction of Iron Ores, Springer-Verlag, Berlin (1971), 1.

Table 4 Heat of Reactions for the Reactions Given by Equations (1)～(4), (kJ/kmole (H_2 or CO)).

	H_2 Reduction		CO Reduction	
$-(\Delta H^\circ_T)_1$	$10.88t'+9290$	$100<t'<300$°C	$54400-9.67t'$	$0<t'<750$°C
	12560	$300<t'<800$°C	$44450+3.64t'$	$t'>750$°C
	$15.10t'+468$	$800<t'<1300$°C		
$-(\Delta H^\circ_T)_2$	$43.40t'-88270$	$100<t'<911$°C	$-58600+41.98t'$	$0<t'<850$°C
	-48720	$911<t'<1300$°C	$-14700-9.67t'$	$t'>850$°C
$-(\Delta H^\circ_T)_3$	$16.24t'-24320$	$100<t'<500$°C	$15900+13.60t'$	$0<t'<400$°C
	-16200	$500<t'<927$°C	$23600-5.57t'$	$t'>400$°C
	$14.11t'-29260$	$927<t'<1300$°C		
$-(\Delta H^\circ_T)_4$	$-38300+19.09t'$	$25<t'<600$°C	$251+19.55t'$	$0<t'<400$°C
			$5280+4.39t'$	$400<t'<850$°C

6. 境界条件

Fig. 1 (a) の場合には固体は層底を通過できるが，ガスは通過できないと仮定した．Fig. 1 (b) の場合はガスが層底から導入される点が Fig. 1 (a) と異なる．この場合の境界条件は前報[16]に示した．Fig. 1 (a) の場合もほとんど (b) の場合と同様であるが，ガスに対しては層底は側壁と同様に考え，圧力勾配がなく，ガスは不透過であるとした．

7. 計算結果

上述の数学的モデルを使用して移動層内のプロセス変数の分布状況あるいは反応成績を推算するために，移動層内における粒子径と空間率の半径方向分布を (16), (17) 式で与えた．

$$d_p = 0.016 - 0.006\,r \tag{16}$$

$$\varepsilon_v = 0.45 - 0.1\,r \tag{17}$$

d_p と ε_v の空間的分布はガス流れに強く影響し，反応成績の改善に重要な役割を果すが，これらの分布は操作条件や原料の性状によっても変化するので，ここでは，1つの極端なケースとして，ガスが主として移動層の中心部を流れるような充填構造を想定した．

Table 5 Numerical Value of the Process Parameters.

Item	Value
Length of the moving bed	10 m
Diameter of the bed	5 m
Apparent density of the pellet	4120 kg/m^3 (solid)
Pressure of top gas	1.013×10^5 Pa
Ambient temperature	293 K
Inlet solid temperature	293 K
Inlet gas temperature	1173 K
Mass velocity of inlet gas	1.389 kg/m^2·s
Molar fraction of each component of inlet gas	50% (H_2 or CD) 50% (N_2)

数値計算に使用した主要なプロセスパラメータの値を Table 5 に示した．ガスの入口条件は一定とし，粒子の装入量を適当に選んで出口反応率が 95～100% になるようにした．数値計算には東北大学大型計算機センターの ACOS シリーズ 77，NEAC システム 700 デジタル計算機を使用した．

7.1　サイドスリットからガスが導入される場合

Fig. 1 (a) に示した形式のシャフト炉を使って Table 5* に示した操業条件で酸化鉄ペレットの H_2 還元を行った場合について，上述の数学的モデルから得られた炉内におけるガス流れ，温度，ガス濃度および固体の反応率分布を Fig. 2〜5 に示した．Fig. 2 に示した ψ の等高線は流線を完全には表わ

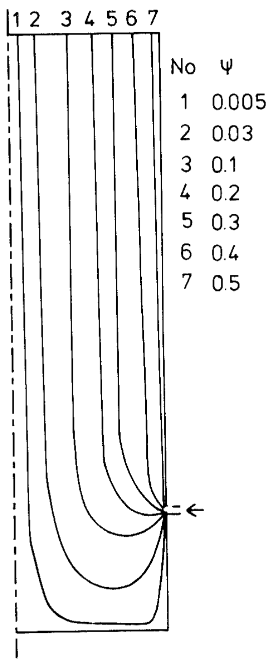

Fig. 2　Contour lines of modified stream function.

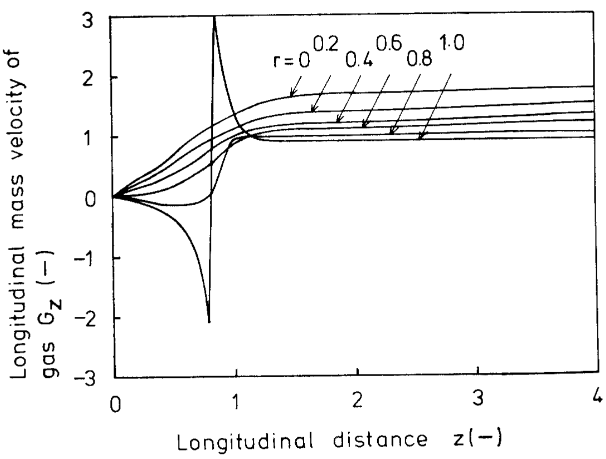

Fig. 3　Longitudinal distribution of G_z.

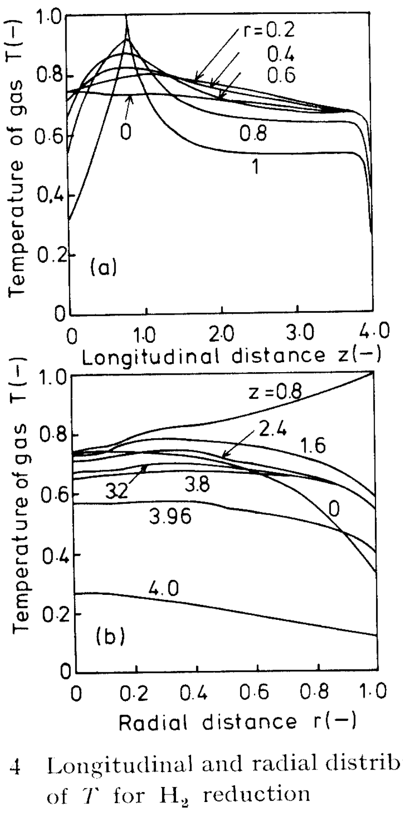

Fig. 4　Longitudinal and radial distribution of T for H_2 reduction

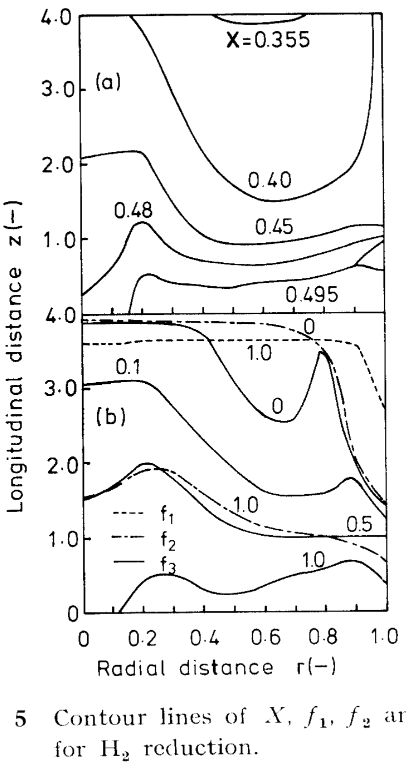

Fig. 5　Contour lines of X, f_1, f_2 and f_3 for H_2 reduction.

* 固体の降下速度はケースによって異なるが，後述の Table 6 に示した計算結果については H_2 Reduction (1)，H_2 reduction (2) および CO Reduction の場合，それぞれ，2.78×10^{-4}，3.33×10^{-4}，2.08×10^{-4} (m/s) である．

していないが，それに近いものであり，サイドスリットより下部にはガスは流れにくいことを示している．Fig. 3 には半径方向各位置における G_z の分布を示した．層底では $G_z=0$ になり，側壁に近い位置ではガスの導入口の近くでガスが上下に分かれて流れるが，少し下流になると主として，層の中心部にガスが流れるようになり，層の構造がガス流れに強く影響することがわかる．

Fig. 4 にはガス温度の軸方向および半径方向分布を示した．$z=0.8$ のレベルにガスの入口があるため，$r=1$（側壁）での温度はこのレベルで最大となるが，その他のレベルでは，側壁からの熱損失のため外周部の方が温度は低くなっている．また，層頂付近では急速な熱交換のため激しい温度変化が起っている．Fig. 4(b) から，層の中央部では半径方向の温度差はほとんどないが，側壁に近づくと，熱損失のため温度が低下することがわかる．

Fig. 5 にはガスの濃度分布と固体の反応率分布を示した．側壁近傍では温度が低いので反応速度が小さく，また，炉の中心部はガスの流量が多いので濃度が高くなり，その中間部に低濃度域ができる．反応率分布はガス濃度と温度に関係する．側壁近傍では低温のため層の上部で反応があまり進行せず，反応率はあまり増加していないが，ガス導入口付近で急速に反応が進行し，完結している．層の中央部では，上部でかなり反応が進行するが，ガスの導入口レベル以下ではガスの流量が小さく，あまり反応が進まない．したがって，FeO が残存したまま排出されることを示している．

7.2 層底からガスが導入される場合

Fig. 1(b) に示したようにガスが層底から導入されるシャフト炉において，酸化鉄ペレットを H_2 あるいは CO で還元した場合の炉内におけるガスの質量速度分布を Figs. 6, 7 に，温度分布を Figs. 8, 9 に，ガスの濃度と固体の反応率の分布を Figs. 10, 11 に，また，固体の質量速度の半径方向分布を Fig. 12 に示した．7.1 節と同様に数値計算には Table 5 に示した操作条件を使用した．

Figs. 6, 7 から，ガスが層底から均一に導入されても，移動層内を数 m 上昇するうちに，ガス流れは充填構造による通気性に支配されるようになることがわかる．H_2 還元の場合，反応に伴う固相から気相への酸素の移動によってガスの質量速度がかなり変化するが，CO 還元の場合はそれほど大きく変化していない．これは，H_2 還元の場合，反応速度が大きいので局所的に気固間で急速

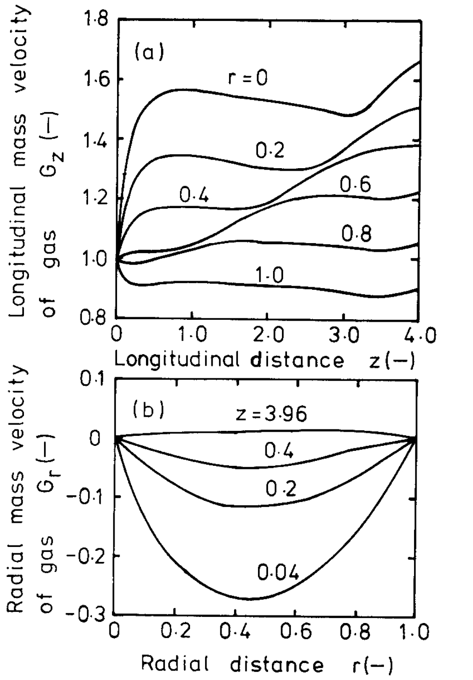

Fig. 6 Longitudinal and radial distribution of G_z and G_r for H_2 reduction.

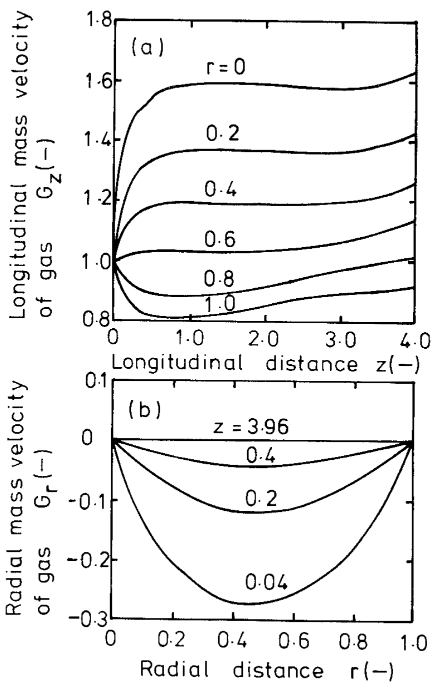

Fig. 7 Longitudinal and radial distribution of G_z and G_r for CO reduction.

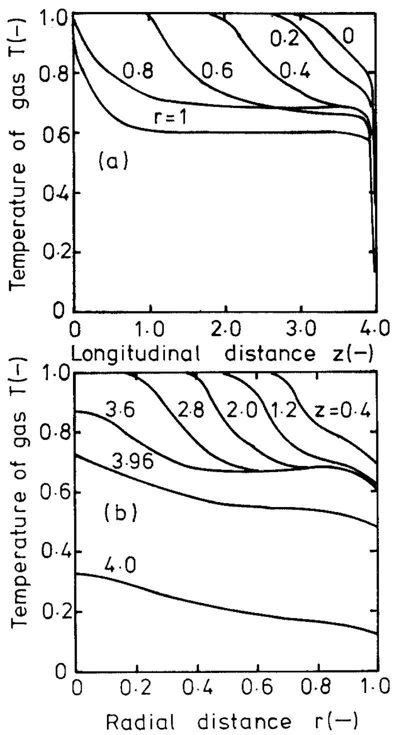

Fig. 8　Longitudinal and radial distribution of T for H_2 reduction.

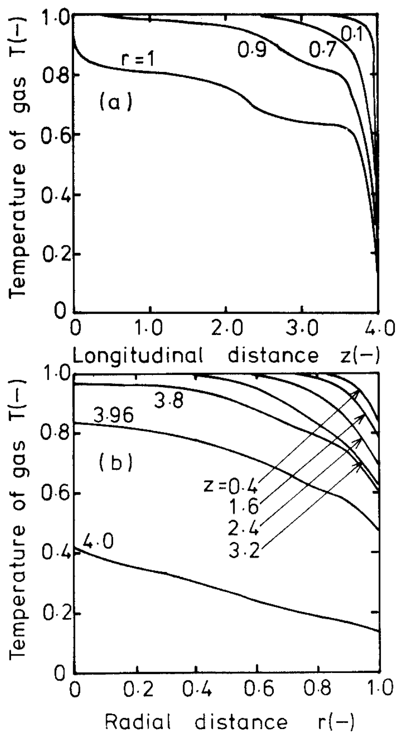

Fig. 9　Longitudinal and radial distribution of T for CO reduction.

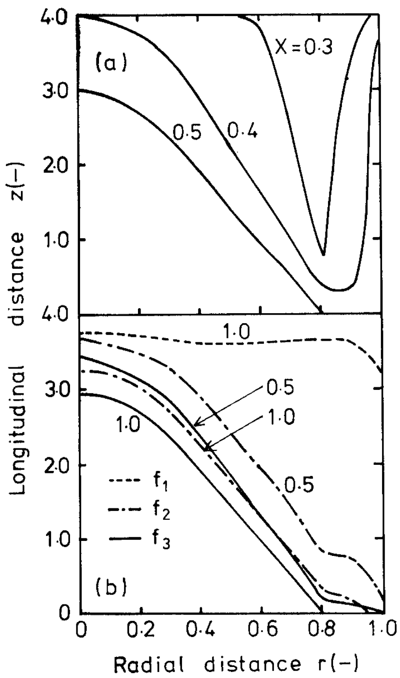

Fig. 10　Contour lines of X, f_1, f_2 and f_3 for H_2 reduction.

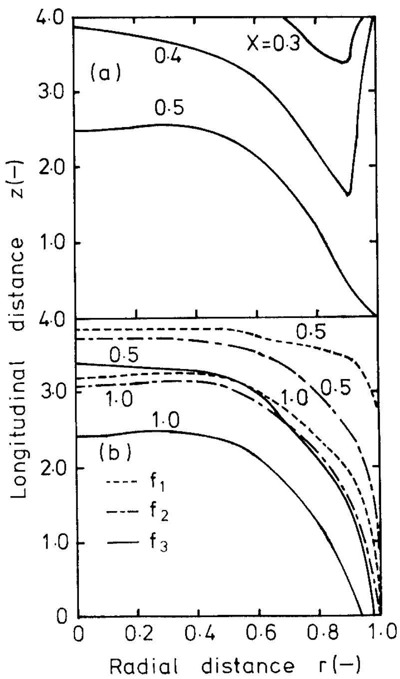

Fig. 11　Contour lines of X, f_1, f_2 and f_3 for CO reduction.

な酸素の移動が起こるためであろう．

Figs. 8(a), 9(a) から，H_2 還元の場合も CO 還元の場合も層頂部でガス温度の急激な変化があり，ガス・固体間の対流熱交換が急速に進行し，ガスが固体を加熱していることがうかがわれる．Figs. 8(b), 9(b) より，側壁近傍では熱損失のため温度が低下しているが，内部においてはガスの顕熱項

が支配的であり，半径方向にあまり温度変化がない．また，全般的にCO還元の場合の方が温度が高くなっているが，これは，H_2還元は吸熱反応であるのに対しCO還元は発熱反応であることに起因する．

Fig. 10(a)，11(a)に還元ガスのモル分率の等高線を示したが，いずれも中央部はガスの流量が大きく，モル分率の変化は小さい．また，側壁近傍では温度が低いので，反応速度が小さくなるため，ガス流量は小さいが還元ガスのモル分率が高い領域が存在する．このような分布はガス流れ，伝熱，反応を伴う物質収支の同時解析によってはじめて理解できる分布傾向である．CO還元に比べてH_2還元の方が，上記濃度分布の傾向がよりシャープであるのは反応速度の相違と，ガスと固体の質量速度の比によると考えられる．Figs. 10(b)，11(b)には各反応段階ごとに反応率の等高線を示した．ガス流れの多い中心部が反応が早く完了し，温度が低く，ガス流れの少ない外周部で反応がおくれている．しかし，H_2還元の場合は比較的分布が直線的であるのに対してCO還元の場合は中央部で反応率がほとんど変化しないで外周部に近づくと急速に低下することを示している．CO還元の場合には弱い発熱反応であるため温度低下が少なく，また，ガス濃度もあまり低下せず，中央部では半径方向であまり分布がないためであろう．

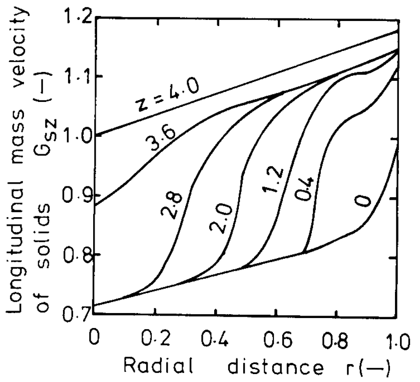

Fig. 12 Radial distribution of G_{sz} for H_2 reduction.

Fig. 12にはH_2還元の場合における固体の質量速度の分布を示している．$z=4.0$の線は層頂で与えられたG_{Sz}の分布を表わしており，εの直線的分布にともなってG_{Sz}も半径方向に直線分布になっている．固体が降下するにともなって反応が進行し，G_{Sz}は減少するが，その傾向は反応の進行に対応している．したがって，ガスの質量速度変化，温度変化，濃度変化に対応した場所に固体の質量速度変化が生じている．

7.3 数値計算によって得られた操業結果の検討

前節で炉内状況を示したシャフト炉の操業結果をTable 6に示した．H_2還元の場合で，還元ガスをサイドスリットから導入した場合(H_2 reduction (1))と層底から導入した場合(H_2 reduction (2))を比較すると，後者の方が成績がよいことになっている．これは前者の場合，Fig. 2からわかるようにサイドスリットから下方へのガスの流れが非常に小さくなり，実質的に反応に有効な容器体積が小さくなっているからであろう．平均還元率がかなり高くなっているのも，生産速度を小さくしている原因と考えられる．Table 6のCO還元とH_2還元(2)を比較すると，H_2還元の方が生産速度はかなり大きくなっているが，単位生産量当りに要した還元ガスの量はかなり多くなっている．これは入口ガスの質量速度を一定として比較したため，導入された還元ガスは容積流量で考えるとH_2還元の場合の方がずっと多くなっているためである．

通常，シャフト炉による直接製鉄プロセスにおいては天然ガスあるいはナフサなどを改質して還元ガスを製造するため，還元ガスとしてCOとH_2の混合ガスを使用している．この場合には，1.3

Table 6 Results of Operation Obtained from the Model.

Item		H_2 reduction (1)	H_2 reduction (2)	CO reduction
Production of sponge iron	(kg/s)	9.97	12.14	7.58
Average fractional reduction	(%)	99.9	95.0	96.0
Pressure of the Inlet gas	(Pa)	1.79×10^5	2.22×10^5	1.79×10^5
Inlet gas volume/Production of sponge iron	(Nm^3/kg)	4.095	3.352	2.875

$\sim 1.8\,Nm^3/kg$ (product)[22)23)] 程度の還元ガスが必要であるが，Table 6 に示した値は，この値の 2～3倍になっている．この原因は還元ガスに N_2 が 50% 入っていることであるが，固体流量に比べてガスの流量を減じればこの数値は改善される．

8. 結　　言

多次元化した Ergun 式に基づくガス流れの解析を導入し，固体反応を伴う伝熱，物質移動およびガスの流動を考慮した移動層の2次元数式モデルおよびその解析法を確立した．

H_2 あるいは CO による酸化鉄の還元操作を行う場合について，この数式モデルに簡単な充填構造を与え，層内におけるプロセス変数の2次元的分布を求めるとともに，反応成績を評価した．

実際のシャフト炉の性能評価を行うには充填層の構造を正確に把握し，固体粒子の特性をも知る必要があるが，本報では基礎的に輸送現象理論を応用し，ガス流れ，伝熱，物質移動の方程式を同時に数値解析した．その結果によると，化学反応が温度と濃度に依存しているため，移動層内における温度と濃度の分布が最終成績におよぼす影響は重要であるが，とくに，ガス流れが温度および濃度分布を支配する重要な因子であることがわかる．したがって，2次元的特質を有する反応器の解析には本報で示した，流動，伝熱，物質移動の同時解析が重要な役割を示すことになる．

記　号　表

C_0： 入口ガスのモル密度　(kmole/m³)
C_g： ガスの無次元比熱
C_{g0}： 入口条件でのガスの比熱　(kJ/kg·K)
C_S： 粒子の無次元比熱
C_{S0}： 入口条件での粒子の比熱　(kJ/kg·K)
D_{oi}： ペレット中における i の反応に関与する酸素の密度　(katom(O_2)/m³(solid))
D_H, D_{CO}： H_2 と CO の分子拡散係数　(m²/s)
D_{ej}： j 相における有効拡散係数　(m²/s)
D_{H_2r}, D_{COr}： H_2 と CO の半径方向混合拡散係数　(m²/s)
D_{H_2z}, D_{COz}： H_2 と CO の軸方向混合拡散係数　(m²/s)
d_p： 粒子径　(m)
F_1, F_2, F_3： $RM_rR_0^*/G_0,\ M_{O_2}RR^*/2G_0,\ M_{O_2}RR_0^*/2G_{S0}$
F_4： $M_{H_2}\{M_{H_2}+X_{N_2}(M_{N_2}-M_{H_2O})\}/\overline{M}^2$ あるいは $M_{CO}\{M_{CO}+X_{N_2}(M_{N_2}-M_{CO_2})\}\overline{M}^2$
f_a： $1.50(1-\varepsilon_v^2)\mu_{mix}RG_0/(\varepsilon_v^3d_p^2\phi\rho P_e)$
f_b： $1.75(1-\varepsilon_v)RG_0^2/(\varepsilon_v^3\phi d_p\rho P_e)$
f_i： i 番目の反応の反応率
f： 総括反応率
G_r, G_z： 半径方向と軸方向における無次元ガス質量速度
G_0： 入口ガスの質量速度　(kg/m²·s)
G_{sr}, G_{sz}： 半径方向と軸方向における無次元粒子の質量速度
G_{s0}： 入口条件での粒子の質量速度　(kg/m²·s)
$(-\Delta H_T{}^\circ)_i, (-\Delta H)$： i 番目の反応の反応熱および無次元の総括反応熱 (kJ/kmole(reducing gas))

22)　成田貴一，金子伝太郎，木村吉雄，竹中芳通，小野田守，田中英年，稲田　裕：鉄と鋼，**65**(1979)，A 125.
23)　西田信直，原　行明，大槻直樹，苫林　徹：鉄と鋼，**65**(1979)，A 129.

h_p: 粒子・流体間伝熱係数 (W/m^2·K)
K_i: i番目の反応の平衡定数
k_i: i番目の反応の反応速度定数 (m/s)
k_g: ガスの無次元有効熱伝導度
$k_g°$: 入口条件でのガスの有効熱伝導度 (W/m·K)
k_s: 固体の無次元有効熱伝導度
$k_s°$: 入口条件での固体の有効熱伝導度 (W/m·K)
L: 層高 (m)
M_i: i成分の分子量 (kg/k mole)
M_r: H_2あるいはCOの分子量 (kg/k mole)
$\overline{M}$: ガスの平均分子量 (kg/k mole)
P: 無次元圧力
P_e, P_0: 出口と入口での圧力 (Pa)
R: 反応器半径 (m)
R^*, R_0^*: 無次元および基準状態での総括反応速度 (k mole(H_2 or CO)/m^3(bed)·s)
r: 無次元半径方向距離
r_0: ペレット半径 (m)
T, T': 無次元ガス温度と有次元ガス温度 (T'/T_0), (°C)
T_a: 無次元ガス温度 ($T'/(T_0+273)$)
T_0: ガスの入口温度 (°C)
t, t': 無次元および有次元固体温度 (t/T_0), (°C)
U_s: 固体の流速 (m/s)
V_i: i番目の反応の反応速度 (k mole(H_2 or CO)/s·(particle))
X: 還元ガスのモル分率
X_i: i成分のモル分率
z: 軸方向における無次元距離 (m)
α_1: $M_{H_2}D_{H_2r}C_0/G_0R$ あるいは $M_{CO}D_{COr}C_0/G_0R$
α_2: $M_{H_2}D_{H_2z}C_0/G_0R$ あるいは $M_{CO}D_{COz}C_0/G_0R$
β, β_s: $k_g°/RG_0C_{g0}$, $k_s°/C_{s0}G_{s0}R$
γ, γ_s: $6(1-\varepsilon_v)h_pR/G_0C_{g0}d_p\phi$, $6(1-\varepsilon_v)h_pR/C_sG_{s0}d_p\phi$
δ, δ_s: $k_g°/C_{g0}G_0R$, $k_s°/G_{s0}C_{s0}R$
ε_v: 空間率
ε_{p0}: 未反応ペレットの気孔率
ζ: $RR_0^*(-\Delta H°_{298})/C_{s0}d_p\phi G_{s0}T_0$
μ_{mix}: 混合ガスの粘度 (kg/m·s)
ρ: ガスの密度
ϕ: 形状係数
ψ: 修正した流れの関数

$i=1$; $Fe_2O_3 \rightarrow Fe_3O_4$, $i=2$; $Fe_3O_4 \rightarrow FeO$, $i=3$; $FeO \rightarrow Fe$, $i=4$; $Fe_3O_4 \rightarrow Fe$
$j=1$; Fe_3O_4, $j=2$; FeO, $j=3$; Fe